

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 08-317762

(43)Date of publication of application : 03.12.1996

BEST AVAILABLE COPY

(51)Int.Cl.

A23L 1/076
C11B 11/00
// A23L 1/30
A61K 35/64

(21)Application number : 07-125315

(71)Applicant : API KK

(22)Date of filing : 24.05.1995

(72)Inventor : KAWAI MASAKI
OIDA SHINSUKE
KANAE JUN

(54) PROPOLIS COMPOSITION

(57)Abstract:

PURPOSE: To obtain a propolis composition containing essentially the whole hydrophilic organic solvent extract of propolis and water extract of propolis in stable states and exhibiting excellent dispersibility in water.

CONSTITUTION: This propolis composition contains ethanol extract of propolis and water extract of propolis. Addition of a saponin to the composition gives a propolis composition having high water dispersibility. The stability of the propolis composition can be improved by adding at least one kind of substances selected from polyols, sugars, sugar alcohols and dextrin. The propolis composition contains the active components of both ethanol extract and water extract and is effectively utilizable as a health food.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination] 13.02.2002

[Date of sending the examiner's decision of rejection] 30.09.2003

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平8-317762

(43) 公開日 平成8年(1996)12月3日

(51) Int.Cl. ⁶	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
A 2 3 L 1/076			A 2 3 L 1/076	
C 1 1 B 11/00			C 1 1 B 11/00	
// A 2 3 L 1/30			A 2 3 L 1/30	B
A 6 1 K 35/64	ADD		A 6 1 K 35/64	ADD

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全 7 頁)

(21) 出願番号 特願平7-125315

(22) 出願日 平成7年(1995)5月24日

(71) 出願人 591045471

アビ株式会社

岐阜県岐阜市加納桜田町1丁目1番地

(72) 発明者 河合 政樹

岐阜市加納桜田町1丁目1番地 アビ 株
式会社内

(72) 発明者 老田 津介

岐阜市加納桜田町1丁目1番地 アビ 株
式会社内

(72) 発明者 金枝 純

岐阜市加納桜田町1丁目1番地 アビ 株
式会社内

(74) 代理人 弁理士 恩田 博宣

(54) 【発明の名称】 プロポリス組成物

(57) 【要約】

【目的】 プロポリスの親水性有機溶媒抽出物とプロポリスの水抽出物とを實質上全て含有するとともに、親水性有機溶媒抽出物と、水抽出物とを安定な形で含有し、しかも優れた水分散性を有するプロポリス組成物を提供する。

【構成】 プロポリス組成物は、プロポリスのエタノール抽出物とプロポリスの水抽出物とを含有する。さらに、サポニンを含むことにより、水分散性の良いプロポリス組成物が得られる。加えて、ポリオール、糖、糖アルコール及びデキストリンからなる群より選ばれる少なくとも1種を含むことにより、プロポリス組成物の安定性を高めることができる。このプロポリス組成物は、エタノール抽出物と水抽出物の双方の有効成分を含有し、健康食品として好適に利用することができる。

【特許請求の範囲】

【請求項1】 プロポリスの親水性有機溶媒抽出物及びプロポリスの水抽出物を含有するプロポリス組成物。

【請求項2】 プロポリスの親水性有機溶媒抽出物、プロポリスの水抽出物及びサポニンを含むプロポリス組成物。

【請求項3】 さらに、ポリオール、糖、糖アルコール及びデキストリンからなる群より選ばれる少なくとも1種を含む請求項2に記載のプロポリス組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 この発明は、健康食品などとして有用なプロポリスの親水性有機溶媒抽出物と水抽出物とを含むプロポリス組成物に関するものである。

【0002】

【従来の技術】 プロポリスはミツバチが植物から採取してくる樹脂状物質であり、多種多様な成分を含む健康食品素材として知られている。天然のプロポリスは爽雑物を含むため、専らこれを抽出した抽出物が利用されている。プロポリスの抽出物としては、エタノール等の親水性有機溶媒に可溶性成分と、水に可溶性成分が利用されている。

【0003】健康食品の分野においては、プロポリス製品の殆どがエタノール抽出液としてあるいはエタノール抽出液に賦形剤を加えて粉末、錠剤、カプセル等として使用されている。これらのエタノール抽出物には、フラボノイド類、フェノール酸類、クマリン類、芳香族アルデヒド類などの物質が含まれていることが確認され、これらの物質に基づいて抗菌作用や抗酸化作用があることが報告されている。プロポリスのエタノール抽出液は大部分が疎水性成分のため、飲用の際にヤニ状となって飲用しにくく問題となっていた。そのため、これを改善するいくつかの技術が提案されている。

【0004】例えば、特公平4-66544号公報においては、プロポリス食品組成物及びその製造方法が提案されている。すなわち、この方法によれば、一価アルコールに可溶性プロポリス成分または水素結合し得る複数個のヒドロキシル基（OH基）含有媒体に可溶性プロポリス成分が、複数個のOH基含有媒体と脂肪酸エステル系界面活性剤とにより安定に分散されたプロポリス組成物が得られる。

【0005】また、特開平6-197734号公報には、別のプロポリス組成物及びその製造法が開示されている。この方法によれば、プロポリスのエタノール抽出物にサポニンを含むさせることによりプロポリスの水への分散性が改善される。

【0006】さらに、特開平5-316968号公報には、精製されたプロポリス抽出物とその製造方法並びにその用途が開示されている。それによれば、プロポリスの親水性有機溶媒抽出画分中で濃度が30～55容量%

の溶媒に可溶性画分のみが精製され、取り扱いが容易になっている。

【0007】一方、プロポリスをエタノール等の親水性有機溶媒ではなく、水を用いて抽出する水抽出法も知られている。この水抽出物中には制癌作用のある物質が存在することが報告され、注目されている。水抽出物としては、水抽出液の形態とした製品が知られている。

【0008】このように、プロポリスはエタノールに代表される親水性有機溶媒や、水によりそれぞれ異なる成分が抽出され、各々特有の有効成分が含まれた各抽出物を得る技術が確立されてきた。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】 ところが、今までには、これらの抽出物がそれぞれ別個に利用されてきたため、プロポリスの原体の可溶性成分を実質上全て含む組成物といえるものではなかった。従って、親水性有機溶媒に抽出される成分と、水に抽出される成分とを同時に有効に利用することができなかった。

【0010】また、プロポリスの親水性有機溶媒抽出物は水に分散しにくい高濃度で混合すればヤニ状となり、容器等に不着したり、分離、沈殿したりして、飲用が困難となる。しかも、水抽出物は親水性有機溶媒濃度によっては、抽出成分が溶解されないため沈殿を生ずる。これらの性状は、商品の安定性と利用性の面から大きな問題である。

【0011】この発明は、以上のような従来技術の問題に着目してなされたものである。その目的とするところは、プロポリスの親水性有機溶媒抽出物とプロポリスの水抽出物とを実質上全て含むプロポリス組成物を提供することにある。

【0012】その他の目的とするところは、プロポリスの親水性有機溶媒抽出物と、水抽出物とを安定な形で含有し、しかも優れた水分散性を有するプロポリス組成物を提供することにある。

【0013】

【課題を解決するための手段】 上記の目的を達成するために、請求項1に記載のプロポリス組成物の発明では、プロポリスの親水性有機溶媒抽出物及びプロポリスの水抽出物を含有するものである。

【0014】また、請求項2に記載の発明では、プロポリスの親水性有機溶媒抽出物、プロポリスの水抽出物及びサポニンを含むものである。加えて、請求項3に記載の発明では、ポリオール、糖、糖アルコール及びデキストリンからなる群より選ばれる少なくとも1種を含むものである。

【0015】以下に、この発明について、詳細に説明する。原料のプロポリスは、ブラジル、中国、日本、米国、ヨーロッパなど多くの産地で得られるが、この発明ではいずれの産地のものも使用することができる。このプロポリスは、有効成分の抽出を促進するために、予め

粉碎しておくことが望ましい。この場合、プロポリスは熱により粘着性を有するので、冷凍粉碎や冷却粉碎で粉碎することが望ましい。

【0016】親水性有機溶媒は、プロポリス中の親水性有機溶媒に可溶な有効成分を抽出するもので、水と互いに溶解するエタノール、メタノール、イソプロパノールなどの低級アルコールのほか、アセトン、メチルエチルケトンなどのケトン類などが用途に応じて選択して使用される。食品を用途とする場合、通常エタノールが用いられる。親水性有機溶媒の濃度は、この有機溶媒に溶ける成分を効率良く抽出するため、60容量%以上が好ましく、80容量%以上の高純度のものがさらに好ましい。この親水性有機溶媒の使用量は、プロポリス原料に対して半量以上、好ましくは同量以上である。

【0017】プロポリスの親水性有機溶媒抽出物は、プロポリス原料から親水性有機溶媒により抽出されたものである。抽出条件は、原料中に溶媒が十分に浸透することが重要で、抽出量に応じた抽出時間と適度の攪拌が必要である。通常、10～20℃の常温付近の温度で攪拌しながら24時間以上、好ましくは72時間以上抽出操作を行う。このような常温付近での操作は、作業性が良く、濾過性も良いからである。なお、抽出効率を高め、短時間で抽出を行うためには、昇温した方が良いが、抽出物の濾過性が悪くなる。この場合、珪藻土などの濾過助剤を使用することにより、濾過性を改善することができる。

【0018】親水性有機溶媒は原料への浸透性がよく、また引火しやすい性質を有するものもあるので、その場合には昇温しないで抽出するのが望ましい。得られた抽出物は、そのまま利用できるが、必要に応じて希釈したり、濃縮したりして利用することもできる。

【0019】一方、プロポリスの水抽出物は、水に可溶な有効成分をプロポリス原料から水で抽出したものである。水抽出における抽出温度は、常温でもよいが、抽出効率を高め、抽出時間を短くするため、10℃以上が好ましく、40℃以上が特に好ましい。抽出時間は抽出量にもよるが、5時間以上であることが望ましい。この場合、攪拌しながら抽出操作を行うのが好ましい。溶媒としての水の量は、プロポリス中の有効成分の水抽出率が低いため、原料の2倍量以上が好ましく、5倍量以上がさらに好ましい。この水抽出物は、そのまま利用できるが、必要に応じて希釈したり、濃縮したりして利用できる。

【0020】ところで、親水性有機溶媒抽出物と水抽出物を取得するためのプロポリス原料は、同一物でも別個の物でもよいが、抽出工程の作業性およびプロポリス組成物の収率を考慮すると同一原料から2種類の抽出を行うのが好ましい。すなわち、プロポリス原料をまず親水性有機溶媒で抽出した後、その残分を水抽出に供しても良いし、逆に水抽出を行なった後の残分を親水性有機溶

媒抽出に供してもよい。中でも、同一原料を用いて先に親水性有機溶媒抽出を行い、次にその残分を水抽出するのが最も好ましい。すなわち、先に親水性有機溶媒抽出に供した後の残分は、親水性有機溶媒の作用で作業性のよい物性に変えられて、抽出水の浸透性が良くなり、また抽出液の濾過も容易となる。さらに、水抽出時におけるヤニの発生も抑制され、そのうえプロポリス組成物の収率も向上する。

【0021】2つの抽出物の混合比率は、特に限定されるものではないが、プロポリス原料の完全成分含有という点からすれば、原料の組成と一致させたほうが好ましい。すなわち、例えばある原料100重量部から親水性有機溶媒抽出物が固形分として40重量部と、水抽出物が固形分として10重量部が抽出できたならば、親水性有機溶媒抽出物と水抽出物の混合比率は、固形分で4:1が好ましい。但し、いずれかの抽出物の有効成分を重視する商品設計上、特に一方の成分を優位に含有させてもよく、限定されるものではない。

【0022】次に、サポニンは、プロポリスの親水性有機溶媒抽出物とプロポリスの水抽出物とを安定した状態で混合し、さらには飲用の際の優れた水分散性をもたせるためのものである。

【0023】サポニンとは、植物中に存在する配糖体で、分子構造中に疎水性部分と親水性部分を有し、この構造によっていわゆる界面活性力を示す。サポニンは、人参サポニンや大豆サポニンなどそれ自体が機能性食品素材となっているように、界面活性剤としては一般の化学合成品に比べ健康食品素材として優れている。

【0024】サポニンとしては、食品用のキラヤサポニン、人参サポニン、大豆サポニン、エンジュサポニンなどが適している。サポニンの純度は、界面活性力を有すれば特に限定されるものではないが、キラヤサポニンは界面活性力に優れ、乳化剤として市販されているため特に好ましい。また、サポニンの使用量は、プロポリスの親水性有機溶媒抽出物とプロポリスの水抽出物の濃度と配合比率によっても異なるが、通常プロポリスの親水性有機溶媒抽出固形分に対して、サポニン固形分として0.01～50重量%が好ましく、1～20重量%がさらに好ましい。

【0025】次に、ポリオール、糖、糖アルコール及びデキストリンからなる群より選ばれる少なくとも1種は、乳化助剤、安定剤、賦形剤などの機能を有し、サポニンの機能を高め、より安定化させるものである。これらポリオール、糖、糖アルコール、デキストリンは、その純度や種類に特に制限されないが、プロポリス組成物の分散性がよく、適度な粘度を有することが必要である。この性質により、プロポリス組成物はより安定な性状となる。

【0026】ポリオールとは、グリセリン、プロピレングリコールなどの多価アルコールであるが、食品に制限

なく使用できるグリセリンが特に好ましい。また、糖としてはショ糖、果糖、ブドウ糖、蜂蜜、水飴等いずれも使用される。糖アルコールとしては、ソルビトール、マルチトール、還元水飴等いずれも使用される。また、デキストリンは、サイクロデキストリン、分岐サイクロデキストリン等いずれも使用される。これらのポリオール、糖、糖アルコール、デキストリンの量及び濃度は特に限定されるものではないが、プロポリスの親水性有機溶媒抽出物を0.1～10重量%含有する濃度が特に好ましい。

【0027】次に、親水性有機溶媒抽出物の溶液と水抽出物の水溶液の混合の方法は、特に制限されないが、プロベラ式攪拌機のような分散乳化できる装置を用いることが好ましい。

【0028】プロポリス組成物は、必要に応じて所定濃度に希釈したり、濃縮したり、糖類などの賦形剤を添加してペーストや粉末にしてもよい。さらに、液状のドリンクや固形の錠剤などのあらゆる食品形態にしてもよい。

【0029】粉末化する場合、まず前述した液状のプロポリス組成物を固形分が好ましくは10重量%以上さらに好ましくは30重量%以上となるように濃縮する。次いで、この濃縮液に乳糖、デキストリン、米粉などの賦形剤を50重量%以上加え、熱風乾燥機、減圧乾燥機、凍結真空乾燥機などを用いて30～80℃で5～24時間乾燥する。そして、この乾燥物を粉砕機などで粉砕して、50メッシュ以下の粉末とする。

【0030】ところで、この発明のプロポリス組成物は、親水性有機溶媒抽出物の粉末と水抽出物の粉末を混合したものであってもよい。この場合、親水性有機溶媒抽出物の溶液の粉末化方法としては、まず抽出物濃度が好ましくは10重量%以上、さらに好ましくは30重量%以上となるように濃縮する。次いで、この濃縮液に乳糖、デキストリン、米粉などの賦形剤を好ましくは10重量%以上、さらに好ましくは30重量%以上加える。続いて、熱風乾燥機、減圧乾燥機、凍結真空乾燥機などを用いて30～80℃で5～24時間乾燥する。そして、この乾燥物を粉砕機などで粉砕して、50メッシュ以下の粉末とする。

【0031】一方、水抽出物の水溶液の粉末化方法としては、まず上記と同様に抽出物濃度が好ましくは10重量%以上、さらに好ましくは30重量%以上となるように濃縮する。この濃縮液に前述のような賦形剤を加えてもよいが、加えなくても良好な粉末が得られる。その後、乾燥、粉砕は有機溶媒抽出物溶液の粉末化と同様に行われる。

【0032】このようにして得られた2種類の粉末を、粉粒体混合機により混合することにより、親水性有機溶媒抽出物と水抽出物とを含有する粉末が得られる。以上のように、この発明のプロポリス組成物は、親水性有機

溶媒抽出物と水抽出物とを有し、それぞれ特有の有効成分が含有されていることから、液状、錠剤、カプセル、粉末などの形態で、健康食品や医薬品などとして好適に利用される。

【0033】

【作用】 請求項1に記載のプロポリス組成物では、プロポリスの親水性有機溶媒抽出物とプロポリスの水抽出物との両有効成分を含有していることから、プロポリスの有効成分をより完全な組成で提供することができる。

【0034】請求項2に記載のプロポリス組成物では、サポニンが優れた乳化力を発現することから、プロポリスの親水性有機溶媒抽出物と水抽出物とを含有した安定な組成物が得られ、この組成物は優れた水分散性を示す。

【0035】請求項3に記載のプロポリス組成物では、ポリオール、糖、糖アルコールまたはデキストリンが乳化助剤や安定剤としての機能を発現することから、請求項2のプロポリス組成物がより安定化される。

【0036】

【実施例】 以下に、実施例を挙げて、この発明をさらに具体的に説明するが、この発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

(実施例1、プロポリスのエタノール抽出液と水抽出液とを混合した液体の例) 工程1として、冷凍処理した中国産プロポリス原塊10kgを粉砕機〔不二パウダル

(株)製、パルベライザー〕で粉砕し、95容量%エタノール200リットルを加えて、室温で時々攪拌を加えて4日間抽出した。24時間の静置の後、上澄を濾紙〔アドバンテック東洋(株)製、No. 2〕で濾過してプロポリスのエタノール抽出物15.3kg(固形分3.0重量%)を得た。

【0037】工程2として、冷凍処理した中国産プロポリス原塊10kgを粉砕機〔不二パウダル(株)製、パルベライザー〕で粉砕し、水200リットルを加えて、45℃、15時間攪拌機〔(株)島崎製作所製〕で攪拌抽出した。懸濁液に珪藻土〔中央シリカ(株)製、商品名シリカ300S〕を10kg添加して珪藻土濾過に供した。その結果、清澄なプロポリスの水抽出物18.4kg(固形分0.41重量%)を得た。

【0038】工程3として、工程1のプロポリスのエタノール抽出物30.6kgと工程2の水抽出物36.8kgを攪拌機〔(株)島崎製作所製〕で攪拌混合した。この結果、プロポリスのエタノール抽出物と水抽出物とを含有するプロポリス組成物67.2kgが得られた。この組成物はプロポリスのエタノール抽出物1.4重量%とプロポリスの水抽出物0.2重量%を含有している。

(実施例2、実施例1で得た液体の濃縮液に基づく粉末の例) 実施例1のプロポリス組成物30kgを濃縮機〔東京理化工機(株)製、NE51〕で濃縮して濃縮液0.9kgとした。この濃縮液0.9kgと米粉3.5kgを混合

攪拌機〔(株)ダルトン製〕で混合した。混合物を熱風乾燥機〔熱研産業(株)製〕で70℃、12時間乾燥させた。乾燥物を粉碎機〔不二パウダル(株)製、パルベライザー〕で粉碎して50メッシュパスのプロボリスのエタノール抽出物とプロボリスの水抽出物を含有した粉末のプロボリス組成物3kgを得た。

(実施例3、プロボリスのエタノール抽出液を濃縮して粉末化したものと水抽出液を濃縮して粉末化したものとを混合した粉末の例) 実施例1の工程1のプロボリスのエタノール抽出物30.6kgをロータリーエバポレータ〔東京理化器械(株)製、NE-51〕にて濃縮し、濃縮液1.8kg(固形分51重量%)を得た。この濃縮液に乳糖10kgを混合攪拌機〔(株)ダルトン製〕で混合し、熱風乾燥機〔熱研産業(株)製〕にて65℃、12時間乾燥させた。乾燥物を粉碎機〔不二パウダル(株)製、パルベライザー〕にて粉碎して50メッシュパスの粉末10.5kgを得た。

【0039】次に、実施例1のプロボリスの水抽出物36.8kgをロータリーエバポレータ〔東京理化器械(株)製、NE-51〕にて濃縮し、濃縮液0.75kg(固形分20.1重量%)を得た。この濃縮液を凍結真空乾燥機〔(株)大川原製作所SF100〕にて40℃、20時間乾燥させた。乾燥物を粉碎機〔不二パウダル(株)製、パルベライザー〕にて粉碎して50メッシュパスの粉末0.15kgを得た。さらに、このプロボリスのエタノール抽出粉末10.5kgとプロボリスの水抽出物粉末0.15kgを混合機〔不二パウダル(株)製、Vミキサー〕で混合して粉末のプロボリス組成物44.3kgを得た。

(実施例4、プロボリスのエタノール抽出液と水抽出液に蜂蜜を添加した液体の例) 実施例1の工程1のプロボリスのエタノール抽出物30.6kgを蜂蜜60kgに攪拌機〔(株)島崎製作所製〕で攪拌混合し、さらに工程2のプロボリスの水抽出物36.8kgを攪拌混合した。その結果、プロボリスのエタノール抽出物0.7重量%とプロボリスの水抽出物0.08重量%を含有したプロボリス組成物127.4kgを得た。

(実施例5、実施例4の液体に基づく粉末の例) 実施例4のプロボリス組成物10kgにデキストリン〔松谷化学(株)製、パインデックス〕100kgを混合攪拌機〔(株)ダルトン製〕で混合し、熱風乾燥機〔熱研産業(株)製〕にて65℃、12時間乾燥させた。乾燥物を粉碎機〔不二パウダル(株)製、パルベライザー〕にて粉碎して50メッシュパスの粉末101kgを得た。

(実施例6、プロボリスのエタノール抽出液と水抽出液とサポニンを含有する液体の例) 工程1として、冷凍処理をしたブラジル産プロボリス原塊10kgを粉碎後〔不二パウダル(株)製、パルベライザー〕で粉碎し、80%エタノール50リットルを加えて、室温で8日間攪拌抽出した。24時間の静置の後、上澄を濾紙〔アドバン

テック東洋(株)製 No. 2〕で濾過してプロボリスのエタノール抽出物33kg(固形分10.6重量%)を得た。

【0040】工程2として、冷凍処理したブラジル産プロボリス原塊10kgを粉碎機〔不二パウダル(株)製、パルベライザー〕で粉碎し、水100リットルを加えて、45℃、15時間攪拌機〔(株)島崎製作所製〕で攪拌抽出した。懸濁液に珪藻土〔中央シリカ(株)製シリカ100F〕を10kg添加して珪藻土濾過に供した。その結果、清澄なプロボリスの水抽出物85kg(固形分1.0重量%)を得た。

【0041】工程3として、工程1のエタノール抽出物6.6kgにサポニン〔丸善製薬(株)製 キラヤニンC-100〕500gを添加し、攪拌混合した。さらに、この混合物を工程2の水抽出物17kgに攪拌混合した。その結果、プロボリスのエタノール抽出物と水抽出物とサポニンを含有したプロボリス組成物24kgを得た。このプロボリス組成物1gを直接飲用したところ、口腔中でヤニ化することなく摂取することができた。

(実施例7、実施例6の液体に基づく粉末の例) 実施例6のプロボリス組成物10kgを濃縮機〔東京理化器械(株)製、NE51〕で濃縮して濃縮液1.5kgとした。この濃縮液に乳糖7kgを混合攪拌機〔(株)ダルトン製〕で混合した。混合物を熱風乾燥機〔熱研産業(株)製〕で70℃、12時間乾燥させた。乾燥物を粉碎機〔不二パウダル(株)製、パルベライザー〕で粉碎して50メッシュパスのプロボリスのエタノール抽出物とプロボリスの水抽出物とサポニンを含有した粉末のプロボリス組成物2.1kgを得た。

(実施例8、水抽出後の残液をエタノール抽出し、それにサポニン、還元水飴を加えた液体の例) 工程1として、冷凍処理したウルグアイ産プロボリス原塊1kgを粉碎機〔不二パウダル(株)製、パルベライザー〕で粉碎し、水10リットルを加えて、40℃、17時間攪拌機〔(株)島崎製作所製〕で攪拌抽出した。上澄を濾紙〔アドバンテック東洋(株)製、No. 2〕で濾過して濾過液8.3kgを得た。濾過液に珪藻土〔中央シリカ(株)製 シリカ100F〕を100g添加して珪藻土濾過に供した。この結果、清澄なプロボリスの水抽出物8.1kg(固形分1.1重量%)を得た。

【0042】工程2として、工程1の抽出残分に95%エタノール3リットルを加えて、室温で24時間攪拌抽出を行なった。24時間の静置の後、上澄を濾紙〔アドバンテック東洋(株)、No. 2〕で濾過してプロボリスのエタノール抽出物1.9kg(固形分14重量%)を得た。

【0043】工程3として、工程2のプロボリスのエタノール抽出物1.9kgにサポニン〔丸善製薬(株)製、キラヤニンC-100〕100gを添加し、攪拌機〔(株)島崎製作所製〕で攪拌混合し、混合液2.0kg

を得た。この混合液2.0kgを還元水飴〔日研化学(株)製SE600〕20kgに攪拌混合し、さらに工程1のプロボリスの水抽出物8.1kgを攪拌混合した。この結果、プロボリスのエタノール抽出物と水抽出物を含有したプロボリス組成物30kgを得た。この組成物は優れた水分散性を示した。

(実施例9、実施例8の液体に乳糖を加えた粉末の例)
実施例8のプロボリス組成物10kgに乳糖60kgを混合攪拌機〔(株)ダルトン製〕で混合した。混合物を熱風乾燥機〔熱研産業(株)製〕で70℃、12時間乾燥させた。乾燥物を粉碎機〔不二パウダル(株)製、バルベライザー〕で粉碎して50メッシュパスのプロボリスのエタノール抽出物とプロボリスの水抽出物とサポニンと還元水飴と乳糖を含有した粉末のプロボリス組成物64kgを得た。

(実施例10、エタノール抽出液にサポニンを加えた液体と、グリセリンと、エタノール抽出後の残液からの水抽出液とを混合した液体の例) 工程1として、冷凍処理したブラジル産プロボリス原塊1kgを粉碎機〔不二パウダル(株)製、バルベライザー〕で粉碎し、90容量%エタノール8リットルを加えて、室温で4日間攪拌抽出した。24時間の静置の後、上澄を濾紙〔アドバンテック東洋(株)製No.2〕で濾過して濾過液5.7kgを得た。この濾過液5.7kgを減圧濃縮してプロボリスのエタノール抽出物1.8kg(固形分21重量%)を得た。

【0044】工程2として、工程1の抽出残分に水5リットルを加えて、45℃、13時間攪拌機〔(株)島崎製作所製〕で攪拌抽出した。懸濁液に珪藻土〔中央シリカ(株)製、シリカ600S〕を1kg添加して珪藻土濾過に供した。その結果、清澄なプロボリスの水抽出物4.3kg(固形分1.1重量%)を得た。

【0045】工程3として、工程1のプロボリスのエタノール抽出物1.8kgにサポニン〔丸善製薬(株)製、キラヤニンC-100〕200gを添加し、攪拌機で攪拌混合し、混合液2.0kgを得た。この混合物をグリセリン〔旭電化工業(株)製、食添用グリセリン〕5kgに攪拌混合し、さらに工程2のプロボリスの水抽出物4.3kgに攪拌混合した。

【0046】その結果、プロボリスのエタノール抽出物と水抽出物を含有したプロボリス組成物11.2kgを得た。50mlの水に、このプロボリス組成物を10g希釈したところ、良好な水分散性を示した。

(実施例11、実施例10の液体の濃縮と加水を繰り返してエタノールを除去した液体の例) 実施例10で調製したプロボリス組成物5kgをロータリーエバポレータ〔東京理化工機(株)製、NE51〕で濃縮に供した。濃縮と加水を5回繰り返すことで成分中よりエタノールを除去した。その結果、エタノールを含有しないプロボリス組成物3kgを得た。この組成物においては、エタノールに拒絶反応を示す体質の人であっても問題なくプロボリスを摂取できた。

(実施例12、実施例10の液体をドリンク剤とした例) 実施例10のプロボリス組成物を用いてドリンク剤を調製した。100mlのドリンク剤中にプロボリス組成物2gと蜂蜜、酸味料、ビタミン類を添加し、加熱殺菌した。このドリンク剤は沈澱がなく、プロボリス成分が良好に分散した安定な性状を示した。

【0047】なお、前記実施態様より把握される技術的思想について、以下に記載する。

(1) プリボリスの親水性有機溶媒抽出物が親水性有機溶媒溶液であり、プロボリスの水抽出物が水溶液である請求項1に記載のプロボリス組成物。この構成により、プロボリスの親水性有機溶媒抽出物とプロボリスの水抽出物とを含有する安定な液状のプロボリス組成物が得られる。

(2) プリボリスの親水性有機溶媒抽出物及びプロボリスの水抽出物がともに粉末である請求項1に記載のプロボリス組成物。このように構成すれば、プロボリスの親水性有機溶媒抽出物とプロボリスの水抽出物とを含有する粉末のプロボリス組成物が得られる。

(3) プロボリスの親水性有機溶媒抽出液及びプロボリスの水抽出液を混合し、濃縮した後、賦形剤を加え、次いで乾燥させるプロボリス組成物粉末の製造方法。この製造方法によれば、プロボリス組成物の粉末を容易に製造することができる。

(4) 前記賦形剤は、乳糖、デキストリン又は米粉である上記(3)に記載のプロボリス組成物粉末の製造方法。この方法によれば、プロボリス抽出液の粉末化をより円滑に行うことができる。

(5) 原料となるプロボリス原塊を粉碎した後に、親水性有機溶媒抽出液で抽出操作を行うとともに、水で抽出操作を行い、プロボリスの親水性有機溶媒抽出液と水抽出液を混合するプロボリス組成物の製造方法。この方法によれば、両抽出物を含有するプロボリス組成物を効率良く得ることができる。

(6) プロボリス原料中の有効成分を親水性有機溶媒で抽出し、その残分をさらに水で抽出し、両抽出液を混合するプロボリス組成物の製造方法。この方法によれば、ヤニの発生を防止しつつ、経済的にプロボリス組成物を製造することができる。

(7) サポニンはキラヤサポニンである請求項2に記載のプロボリス組成物。このように構成すれば、プロボリス抽出物の水分散性と安定性を向上させることができる。

(8) プリボリスの親水性有機溶媒抽出物とプロボリスの水抽出物の混合比率は、原料となるプロボリス中の親水性有機溶媒抽出量と水抽出量との比率である請求項1に記載のプロボリス組成物。この構成により、プリボリス中の親水性有機溶媒抽出物と水抽出物とを実質上全て

(7)

含有するプロポリス組成物を得ることができる。

【0048】

【発明の効果】 以上詳述したように、請求項1に記載のプロポリス組成物の発明によれば、プロポリスの親水性有機溶媒抽出物とプロポリスの水抽出物とを実質上全て含有するプロポリス組成物を得ることができる。

【0049】 また、請求項2に記載の発明によれば、プ

ロポリスの親水性有機溶媒抽出物と、水抽出物とを安定な形で含有し、しかも良好な水分散性を有するプロポリス組成物を得ることができる。

【0050】 さらに、請求項3に記載の発明によれば、プロポリスの親水性有機溶媒抽出物と、水抽出物とをより安定な形で含有し、かつ優れた水分散性を有するプロポリス組成物を得ることができる。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.

THIS PAGE BLANK (USPTO)